

Docket No.: 50195-366

**PATENT**

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of

Tetsurou TAYU, et al.

Serial No.:

Group Art Unit:

Filed: June 23, 2003

Examiner:

For: RARE EARTH MAGNET, METHOD FOR MANUFACTURING THE SAME, AND MOTOR  
USING RARE EARTH MAGNET

**CLAIM OF PRIORITY AND  
TRANSMITTAL OF CERTIFIED PRIORITY DOCUMENT**

Mail Stop  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:


In accordance with the provisions of 35 U.S.C. 119, Applicants hereby claim the priority of:

**Japanese Patent Application No. P2002-187912, filed June 27, 2002**

cited in the Declaration of the present application. A certified copy is submitted herewith.

Respectfully submitted,

MCDERMOTT, WILL & EMERY

  
Robert L. Price  
Registration No. 22,685

600 13<sup>th</sup> Street, N.W.  
Washington, DC 20005-3096  
(202) 756-8000 RLP:mcw  
Facsimile: (202) 756-8087  
**Date: June 23, 2003**

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

50193-366

TAYU et al.

June 23, 2003.

McDermott, Will & Emery

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 6月27日

出願番号

Application Number:

特願2002-187912

[ST.10/C]:

[JP2002-187912]

出願人

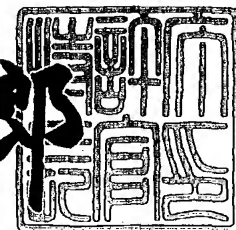
Applicant(s):

日産自動車株式会社

2003年 3月24日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3019342

【書類名】 特許願

【整理番号】 NM01-02464

【提出日】 平成14年 6月27日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 H01F 1/08  
B22F 38/00  
C22C 38/00

【発明の名称】 希土類磁石およびその製造方法、ならびに希土類磁石を用いてなるモータ

【請求項の数】 8

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社  
社内

【氏名】 田湯 哲朗

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社  
社内

【氏名】 小野 秀昭

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社  
社内

【氏名】 島田 宗勝

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社  
社内

【氏名】 加納 眞

【特許出願人】

【識別番号】 000003997

【氏名又は名称】 日産自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】 100072349

【弁理士】

【氏名又は名称】 八田 幹雄

【電話番号】 03-3230-4766

【選任した代理人】

【識別番号】 100102912

【弁理士】

【氏名又は名称】 野上 敦

【選任した代理人】

【識別番号】 100110995

【弁理士】

【氏名又は名称】 奈良 泰男

【選任した代理人】

【識別番号】 100111464

【弁理士】

【氏名又は名称】 齋藤 悦子

【選任した代理人】

【識別番号】 100114649

【弁理士】

【氏名又は名称】 宇谷 勝幸

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001719

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 希土類磁石およびその製造方法、ならびに希土類磁石を用いてなるモータ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 希土類磁石粒子と、前記希土類磁石粒子間に存在する下記式 (I) :

【化 1】



(式中、Rはテルビウム (T b)、ジスプロシウム (D y)、ホルミウム (H o)、エルビウム (E r)、ツリウム (T m)、イッテルビウム (Y b)、またはルテチウム (L u) である)

で表される希土類酸化物と、を含む希土類磁石。

【請求項 2】 前記希土類磁石粒子の平均粒径が、10～500 μmであることを特徴とする請求項 1 に記載の希土類磁石。

【請求項 3】 Nd-Fe-B系磁石であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の希土類磁石。

【請求項 4】 異方性磁石であることを特徴とする、請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載の希土類磁石。

【請求項 5】 希土類磁石粉末および下記式 (I) :

【化 2】



(式中、Rはテルビウム (T b)、ジスプロシウム (D y)、ホルミウム (H o)、エルビウム (E r)、ツリウム (T m)、イッテルビウム (Y b)、またはルテチウム (L u) である)

で表される希土類酸化物粉末からなる混合体を調製する段階 (1) と、

前記混合体を成形型に充填する段階 (2) と、

前記混合体を成形する段階 (3) と、

を含む希土類磁石の製造方法。

【請求項 6】 前記希土類磁石粉末は異方性磁石粉末であり、前記段階 (2)

）と（３）との間に、前記希土類磁石粉末を磁場配向させながら仮成形する段階（４）を含むことを特徴とする請求項５に記載の希土類磁石の製造方法。

【請求項７】 前記段階（３）は、加圧焼結によって前記混合体を成形する段階であることを特徴とする請求項５または６に記載の希土類磁石の製造方法。

【請求項８】 請求項１～４のいずれか１項に記載の希土類磁石を用いてなるモータ。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は、高い電気抵抗を有する希土類磁石に関する。

【０００２】

【従来の技術】

永久磁石式モータに用いられる磁石としては、従来は安価なフェライト磁石が多用されていたが、回転電機の小型化・高性能化に伴い、より高性能な希土類磁石の使用量が年々増加している。代表的な希土類磁石としてはＳｍ－Ｃｏ系磁石、Ｎｄ－Ｆｅ－Ｂ系磁石が挙げられ、さらなる高性能化、低価格化を達成するための開発が進行している。

【０００３】

しかしながら、希土類磁石は金属磁石であるために電気抵抗が低い。このため、モータに組み込んだ場合の渦電流損が増大し、モータ効率を低下させる問題が生じる。そこで、希土類磁石自体の電気抵抗を高めて、この問題を解決する技術が各種提案されている。

【０００４】

例えば、特開平１０－３２１４２７号には、希土類磁石粒子がＳｉＯ<sub>2</sub>および／またはＡｌ<sub>2</sub>Ｏ<sub>3</sub>粒子で結着された構造を有する希土類磁石が提案されている。希土類磁石の間にＳｉＯ<sub>2</sub>やＡｌ<sub>2</sub>Ｏ<sub>3</sub>が存在していると、希土類磁石の電気抵抗を高めることができる。しかしながら、ＳｉＯ<sub>2</sub>やＡｌ<sub>2</sub>Ｏ<sub>3</sub>を加えることによって磁石特性は大きく低下してしまう。これでは、中～大出力モータには適用しづらい。

【0005】

上述のように、従来技術は、希土類磁石の電気抵抗を上昇させることができて、その一方で磁石特性の大幅な低下を引き起こしてしまっていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

したがって本発明の目的とするところは、高い電気抵抗を有し、しかも磁石特性の低下が最小限に抑えられている希土類磁石を提供することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明は、希土類磁石粒子と、前記希土類磁石粒子間に存在する下記式 (I)

【0008】

【化3】



【0009】

(式中、Rはテルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb)、またはルテチウム (Lu) である)

で表される希土類酸化物と、を含む希土類磁石である。

【0010】

【発明の効果】

本発明の希土類磁石は、希土類磁石粒子間に希土類酸化物が存在し、希土類酸化物によって希土類磁石粒子が連結された構造を有する。このため、得られる希土類磁石は非常に高い電気抵抗を有する。その上、本発明で規定する所定の希土類酸化物は、希土類元素との反応性に乏しい。このため、加圧焼結などの厳しい製造条件を用いた場合であっても、得られる希土類磁石は、非常に優れた磁石特性を有する。

【0011】

【発明の実施の形態】

本願発明の第一は、希土類磁石粒子と、前記希土類磁石粒子間に存在する下記式 (I) :

【0012】

【化4】



【0013】

(式中、Rはテルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb)、またはルテチウム (Lu) である)

で表される希土類酸化物と、を含む希土類磁石である。まず、図面を参照しながら、本発明の希土類磁石について説明する。

【0014】

図1は、本発明の希土類磁石の断面模式図である。本発明の希土類磁石1は、磁石特性を発現する希土類磁石粒子2、および絶縁性の希土類酸化物3を含む。希土類酸化物3は希土類磁石粒子2の間に存在し、希土類磁石粒子2が希土類酸化物3によって連結された構造となっている。図2は、図1において破線で示した部分の拡大図である。希土類磁石粒子2の原料としてHDDR法や熱間塑性加工を用いて調製された異方性希土類磁石粉末を用いる場合には、希土類磁石粒子2は、図2に示すように、多数の微細な結晶粒4の集合体である。この場合において、粒子のサイズは、通常は、希土類磁石粒子2の大きさが10~500 μm、希土類磁石粒子2を構成する結晶粒4の大きさは500 nm以下である。

【0015】

このように、希土類磁石1において希土類磁石粒子2の間に希土類酸化物3が存在すると、希土類酸化物3が絶縁物として作用し、希土類磁石1の電気抵抗が著しく高まる。なお、希土類磁石粒子2は、完全に希土類酸化物3によって被覆されていることが好ましいが、電気抵抗を高める効果が発現するのであれば、希土類酸化物3によって被覆されていない部分が存在してもよい。また、希土類酸化物3の形状は、図示するように連続する壁となって希土類磁石粒子2を取り囲むものであってもよく、粒子が連なって希土類磁石粒子2を隔離しているもので



あってもよい。なお、図は理解の容易のために簡略化されたものであり、本発明の技術的範囲が、図示するような態様の磁石に限定されるものではない。

## 【0016】

ところで、エネルギー積の高い希土類磁石を得るためには、磁石中に存在する強磁性体の体積分率を十分に高める必要がある。しかしながら、希土類磁石は一般に硬いため、980MPa以下の実用的な印加圧力による冷間成形では、十分な塑性変形を起こすことができず、結果として得られる磁石は空孔を多く含んだ、エネルギー積が低いものとなる。

## 【0017】

そこで、加熱により磁石粉末を軟化させながら加圧成形する、すなわち加圧焼結を行うことが有効である。かような加圧焼結によれば、原料である希土類磁石粉末を十分に塑性変形させ、高密度な希土類磁石を得ることができる。加圧焼結に必要な温度は、例えばNd-Fe-B系希土類磁石粉末を用いる場合には、およそ500℃以上である。したがって、希土類磁石中に存在する絶縁物は、加圧焼結のような高温に晒された場合であっても、十分な絶縁特性を維持しうることが要求される。

## 【0018】

一方、希土類磁石は一般に表面酸化等の化学変化に弱く、特に保磁力や残留磁化等の磁石特性の劣化が問題となる。これは、加圧焼結など製造工程において、磁石中に含まれる活性な希土類元素が絶縁物を還元してしまうためと推測される。したがって、希土類磁石中に存在する絶縁物は、磁石成分と反応しないことが要求される。

## 【0019】

本発明者らは、これらの特性（絶縁物の耐熱性、磁石成分との非反応性）を満足する絶縁物を得るべく鋭意検討した。これらの特性は複数の要因によって影響を受けていると考えられる。要因の一つとしては、熱力学的安定性の大小関係が考えられる。例えば、Ndと $R_xO_y$ で表記される酸化物の反応においては、原系 $[(4/3)Nd + (2/y)R_xO_y]$ と生成系 $[(2/3)Nd_2O_3 + (2x/y)R]$ の安定性が、希土類元素との反応性に影響を及ぼすと考えられる。

本発明者らは、希土類元素との反応性が小さいと予想される絶縁物を選択することにより、化学的活性に富む希土類元素を含む希土類磁石との反応性が小さい絶縁物の探索も可能であると考えた。

## 【0020】

本発明者らは、かような磁石特性に影響を与えると考えられる要因を考慮し、鋭意検討したところ、 $R_2O_3$ で表される希土類酸化物が絶縁物として優れていることが見出された。ここで、Rはテルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb)、またはルテチウム (Lu) である。これらの希土類酸化物は、希土類磁石の磁石特性の劣化を防ぎ、かつ、希土類磁石の電気抵抗を向上させる上で、希土類酸化物の中でも非常に好適である。なお、Rが異なる希土類酸化物を併用することも可能である。なお、ユーロピウム (Eu) の三二酸化物 ( $Eu_2O_3$ ) は希土類磁石粒子と反応してしまい、希土類磁石特性が劣化してしまう。 $Eu_2O_3$ は希土類磁石粒子と反応して、より低価数酸化物である  $Eu_3O_4$  や  $EuO$  へと還元されるためと考えられる。 $Sm_2O_3$ を絶縁物として用いた場合にも、同様に希土類磁石特性が劣化してしまうが、これも同様の原因によるものと考えられる。

## 【0021】

本発明の希土類磁石の効果についてまとめれば、第一に、希土類磁石粒子間に希土類酸化物が存在する。このため、得られる希土類磁石は非常に高い電気抵抗を有する。第二に、本発明で規定する所定の希土類酸化物は、希土類元素との反応性に乏しい。このため、加圧焼結などの厳しい製造条件を用いた場合であっても、得られる希土類磁石は、非常に優れた磁石特性を有する。第三に、希土類磁石に含まれる希土類酸化物は、高い耐熱性を有する。このため、加圧焼結などの高温条件下に晒されても、十分な絶縁性を維持しうる。

## 【0022】

続いて、本発明の希土類磁石について詳細に説明する。

## 【0023】

(希土類酸化物)

希土類酸化物の組成については、上述した通り、テルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb)、またはルテチウム (Lu) の三二酸化物である。具体的に例示すると、 $Tb_2O_3$ 、 $Dy_2O_3$ 、 $Ho_2O_3$ 、 $Er_2O_3$ 、 $Tm_2O_3$ 、 $Yb_2O_3$  または  $Lu_2O_3$  である。これらの二種以上を用いてもよい。

## 【0024】

希土類酸化物の含有量は、所望する電気抵抗値および磁石特性を考慮して決定すればよい。磁石特性を優先する場合には、希土類酸化物の含有量を抑えればよい。また、電気抵抗値を優先する場合には、希土類酸化物の含有量を増加させればよい。ただし、希土類酸化物の含有量が少なすぎると、希土類磁石の電気抵抗値が十分に高まらない恐れがある。このため、希土類酸化物は、磁石の全質量に対して0.1質量%以上含まれることが好ましく、1質量%以上含まれることがより好ましい。一方、希土類酸化物の含有量が多すぎると、希土類磁石の磁石特性の低下が大きくなる。このため、希土類酸化物は、磁石の全質量に対して20質量%以下含まれることが好ましく、5質量%以下含まれることがより好ましい。

## 【0025】

## (希土類磁石粒子)

希土類磁石粒子は、強磁性の主相および他成分からなる。希土類磁石がNd-Fe-B系磁石である場合には、主相は $Nd_2Fe_{14}B$ 相である。磁石特性の向上を考慮すると、希土類磁石粒子は、HDDR法や熱間塑性加工を用いて調製された異方性希土類磁石粉末であることが好ましい。HDDR法や熱間塑性加工を用いて調製された異方性希土類磁石粉末は、図2に示すような多数の結晶粒4の集合体となる。このとき、結晶粒4が単磁区粒径以下の平均粒径を有していると、保磁力を向上させる上で好適である。希土類磁石粒子は、Nd-Fe-B系磁石の他に、Sm-Co系磁石などが挙げられる。得られる希土類磁石の磁石特性や、製造コストなどを考慮すると、Nd-Fe-B系磁石が好ましい。ただし、本発明の希土類磁石がNd-Fe-B系磁石に限定されるものではない。場合によっては、希土類磁石中には2種以上の希土類磁石粒子が混在していてもよい。

即ち、異なる組成比を有するNd-Fe-B系磁石が2種以上含まれてもよく、Nd-Fe-B系磁石とSm-Co系磁石とが混在していてもよい。

## 【0026】

なお、本願において「Nd-Fe-B系磁石」とは、NdやFeの一部が他の元素で置換されている形態も包含する概念である。Ndは、Dy、Tb等の他の希土類元素で置換されていてもよい。置換にはこれらの一方のみを用いてもよく、双方を用いてもよい。置換は、原料合金の配合量を調整することによって行うことができる。かような置換によって、Nd-Fe-B系磁石の保磁力向上を図れる。置換されるNdの量は、Ndに対して、0.01atom%以上、50atom%以下であることが好ましい。0.01atom%未満であると置換による効果が不十分となる恐れがある。50atom%を超えると、残留磁束密度を高レベルで維持できなくなる恐れがある。

## 【0027】

一方、Feは、Co等の他の遷移金属で置換されていてもよい。かような置換によって、Nd-Fe-B系磁石の磁石のキュリー温度( $T_c$ )を上昇させ、使用温度範囲を拡大させることができる。置換されるFeの量は、Feに対して、0.01atom%以上、30atom%以下であることが好ましい。0.01atom%未満であると置換による効果が不十分となる恐れがある。30atom%を超えると、保磁力の低下が大きくなる恐れがある。

## 【0028】

希土類磁石における希土類磁石粒子の平均粒径は、好ましくは10~500 $\mu$ mである。希土類磁石粒子の平均粒径が10 $\mu$ m未満であると、磁石の比表面積が大きくなるため酸化劣化の影響が大きく、希土類磁石の磁石特性が低下する恐れがある。一方、希土類磁石粒子の平均粒径が500 $\mu$ mより大きいと、製造時の圧力によって磁石粒が砕け、十分な電気抵抗を得ることが難しくなる。加えて、異方性希土類磁石粉末を原料として異方性磁石を製造する場合には、500 $\mu$ mを超えるサイズにわたり、希土類磁石粉末における主相(Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相)の配向方向を揃えることは難しい。希土類磁石粒子の粒径は、磁石の原料である希土類磁石粒子粉末の粒径を調節することに

よって、制御される。なお、希土類磁石粒子の平均粒径はSEM像から算出することができる（本願において以下同じ）。

## 【0029】

（希土類磁石の種類）

本発明は、等方性磁石粉末から製造される等方性磁石、異方性磁石粉末をランダム配向させた等方性磁石、および異方性磁石を一定方向に配向させた異方性磁石のいずれにも適用可能である。高エネルギー積を有する磁石が必要であれば、異方性磁石粉末を原料とし、これを磁場中配向させた異方性磁石が好適である。

## 【0030】

次に、本願発明の第二である、希土類磁石の製造方法について説明する。本願発明の第二は、希土類磁石粉末および下記式（I）：

## 【0031】

【化5】



## 【0032】

（式中、Rはテルビウム（Tb）、ジスプロシウム（Dy）、ホルミウム（Ho）、エルビウム（Er）、ツリウム（Tm）、イットルビウム（Yb）、またはルテチウム（Lu）である）

で表される希土類酸化物粉末からなる混合体を調製する段階（1）と、前記混合体を成形型に充填する段階（2）と、前記混合体を成形する段階（3）と、を含む希土類磁石の製造方法である。

## 【0033】

以下、工程毎に順に説明する。なお、本発明の製造方法を実施するにあたっては、得られる磁石の生産性や特性を高めるために工程を追加してもよい。また、公知の改良を施してもよい。かような製造方法も、本発明において規定する段階を含む限りにおいて、本願発明の技術的範囲に属するものである。

## 【0034】

（混合体の調製）

まず、希土類磁石粉末および所定の希土類酸化物粉末を準備する。

## 【0035】

希土類磁石粉末は、製造する希土類磁石の組成に応じて、原料を配合して製造する。主相が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相であるNd-Fe-B系磁石を製造する場合には、Nd、Fe、およびBを所定量配合する。希土類磁石粉末は、公知の手法を用いて製造した物を用いてもよいし、市販品を用いてもよい。好ましくは、HDDR法や熱間塑性加工を利用したUPSET法を用いて製造された異方性希土類磁石粉末を用いる。かような異方性希土類磁石粉末は、多数の結晶粒の集合体となっている。異方性希土類磁石粉末を構成する結晶粒は、その平均粒径が単磁区臨界粒子径以下であると、保磁力を向上させる上で好適である。具体的には、結晶粒の平均粒径は、500nm以下であるとよい。なお、HDDR法とは、Nd-Fe-B系合金を水素化させることにより、主相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 化合物を $\text{NdH}_3$ 、 $\alpha\text{-Fe}$ 、および $\text{Fe}_2\text{B}$ の三相に分解させ、その後、強制的な脱水素処理によって再び $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ を生成させる手法である。UPSET法とは、超急冷法により作製したNd-Fe-B系合金を、粉碎、仮成形後、熱間で塑性加工する手法である。

## 【0036】

希土類磁石粉末の平均粒径は、10～500 $\mu\text{m}$ が好適である。希土類磁石粉末の平均粒径が10 $\mu\text{m}$ 未満であると、希土類磁石粉末の比表面積が大きくなるため酸化劣化の影響が大きく、希土類磁石の磁石特性が低下する恐れがある。一方、希土類酸化物の平均粒径が500 $\mu\text{m}$ より大きいと、製造時の圧力によって磁石粒が碎け、得られる希土類磁石の電気抵抗が低下する恐れがある。加えて、異方性希土類磁石粉末を原料として異方性磁石を製造する場合には、500 $\mu\text{m}$ を超えるサイズの希土類磁石粉末における主相（Nd-Fe-B系磁石においては、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相）の配向方向を揃えることは難しい。希土類磁石粉末の平均粒径は、粉碎機の選択および粉碎された希土類磁石粒子の選別によって、制御され得る。

## 【0037】

希土類酸化物粉末は、最終的には絶縁物として希土類磁石中に含まれる。具体的には、 $\text{Tb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Dy}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ho}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Er}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Tm}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Yb}_2\text{O}_3$ または

$\text{Lu}_2\text{O}_3$ から選択する。これらの2種以上を併用してもよい。希土類酸化物粉末は、各種市販品をそのまま、またはボールミル等の粉碎機により粉碎して用いる。所定の粒径の希土類元素を酸化処理して得てもよい。希土類酸化物粉末の平均粒径が大きすぎる場合、磁石粒どうしの接触が多く生じてしまい、結果としてバルク体の比抵抗を下げることになる。一方、超微粒子の作製は煩雑である。よって、希土類酸化物粉末の平均粒径は、およそ0.1~3  $\mu\text{m}$ とするとよい。

## 【0038】

準備した希土類磁石粉末および希土類酸化物粉末を用いて混合体を得る。本発明において「混合体」とは、単に希土類磁石粉末および希土類酸化物粉末が混じり合っているもののみならず、希土類磁石粉末および希土類酸化物粉末が物理的または化学的に結着している状態も指す。最終的には、図1に示すように、希土類磁石粒子が希土類酸化物によって囲まれている状態となることを考慮すると、混合体は、希土類酸化物粉末が希土類磁石粉末を被覆してなることが、作業効率上は好ましい。混合体の形成方法は、特に限定されるものではなく、所望する混合体の状態に応じて各種公知技術を用いればよい。希土類酸化物粉末で希土類磁石粉末を被覆するには、希土類錯体化合物を出発原料としたMOCVDなどの手法を用いる。用いる希土類錯体化合物は、200℃以下の温度においても数 Torr以上の蒸気圧を有する化合物が好ましい。例えば、ジスプロシウムを用いる場合には、Tris (2, 2, 6, 6-tetramethyl-3, 5-heptanedionate) dysprosium (III)、Tris (cyclopentadienyl) dysprosium (III)、Dysprosium tri-*i*-propoxideなどが挙げられる。場合によっては、希土類酸化物粉末を含む溶液を用いて、希土類磁石粉末の表面に塗布する手法を用いてもよい。他の手法を用いても、勿論よい。混合体における希土類酸化物の量は、希土類磁石粉末および希土類酸化物粉末の合計量に対して0.1~20質量%が好ましく、1~5質量%がより好ましい。使用する希土類酸化物粉末の粒径を制御する場合には、篩を用いることができる。

## 【0039】

(混合体の成形型への充填)

混合体は成形型中に充填される。成形型の形状は特に限定されず、磁石が適用される部位に応じて決定するとよい。成形型に充填する際には、適当な圧力を加えて仮成形するとよい。仮成形の圧力は、 $9.8 \sim 49.0 \text{ MPa}$  程度である。なお、用いる希土類磁石粉末が異方性磁石粉末である場合には、希土類磁石粉末を磁場配向させながら仮成形することによって、異方性の希土類磁石を得ることができる。なお、加える配向磁場は  $1.2 \sim 2.0 \text{ MA/m}$  程度である。

## 【0040】

## (混合体の成形)

成形型中に充填された混合体を成形して、バルク磁石を得る。なお、上述の仮成形によって混合体を固める作業は、本願における「成形」には該当しないものとする。成形は、磁石製造に通常用いられる公知の装置を用いることができる。好ましくは、加圧焼結によって成形することが好ましい。加圧焼結を用いて成形した場合には、原料である希土類磁石粉末を十分に塑性変形させ、高密度な希土類磁石を得ることができる。加圧焼結方法としては特に規定しないが、ホットプレスまたは放電プラズマ焼結を用いることができる。特に放電プラズマ装置を用いる場合には、短時間で固化可能という利点がある。成形の圧力は、 $4.9 \sim 9.8 \text{ MPa}$  程度である。また、焼結条件は  $600 \sim 850^\circ\text{C}$  で  $0 \sim 5$  分が一般的である。通常の焼結雰囲気は  $10 \text{ Pa}$  以下の真空または不活性ガスフロー下である。

## 【0041】

原料磁石粉末として異方性磁石粉末を使用する場合には、よく知られているように成形時に磁場配向させてもよい。原料磁石粉末の磁化容易軸をそろえた状態で成形することで、配向方向での残留磁化を大きくでき、磁石のエネルギー積を向上させることができる。なお、加える配向磁場は  $1.2 \sim 2.0 \text{ MA/m}$  程度である。

## 【0042】

混合体を成形する段階の温度は特に限られるものではないが、作業の容易性、コストを考慮すると、作業環境の温度下で圧縮することが好ましい。また、作業環境としては、混合体が酸化により劣化することを防ぐため、湿度などの環境に



配慮するとよい。

【0043】

(成形後の処理)

成形後には、加工（切断、研磨など）、表面処理（保護膜の形成、塗装など）、着磁などの処理を行う。

【0044】

希土類磁石の加工には、各種公知技術を適宜適用できる。すなわち、研削（外面研削、内面研削、平面研削、成型研削）、切断（外周切断、内周切断）、ラッピング、面取りなどの加工を実施できる。加工用具としては、ダイヤモンド、G C砥石、外内周切断機、外内周研削機、平面研削機、NC旋盤、フライス盤、マシニングセンターなどが用いることができる。

【0045】

希土類磁石は酸化されやすいので、磁石表面に保護膜を設けてもよい。保護膜の構成は特に限定されるものではなく、磁石特性に応じて好適な組成を選択し、十分な保護効果が得られるように厚さを決定すればよい。保護膜の具体例としては、金属膜、無機化合物膜、有機化合物膜が挙げられる。金属膜としては、Ti、Ta、Ca、Mo、Ni等が挙げられ、無機化合物膜としては、TiN、FeN、CrN等の遷移金属窒化物膜や、NiO、FeO等の遷移金属酸化膜が挙げられ、有機化合物膜としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリウレタン、ポリエステル等からなる樹脂膜が挙げられる。保護膜の厚さは、保護膜を金属膜または無機化合物膜から構成する場合は、0.01~1.0 $\mu$ m程度とすることが好ましく、保護膜を有機化合物から構成する場合は、1~10 $\mu$ m程度であることが好ましい。

【0046】

着磁は、静磁場またはパルス磁場によって行うことができる。飽和に近い着磁状態を得るための目安は、自発保磁力の2倍以上、望ましくは4倍程度の着磁磁場強度である。

【0047】

続いて、本願発明の第三である、モータについて説明する。本願発明の第三は

、本願発明の第一の希土類磁石を用いてなるモータである。参考までに図3に、本発明の高電気抵抗希土類磁石が適用された集中巻の表面磁石型モータの1/4断面図を示す。図中、11はu相巻線、12はu相巻線、13はv相巻線、14はv相巻線、15はw相巻線、16はw相巻線、17はアルミケース、18はステータ、19は磁石、20はロータ鉄、21は軸である。本発明の希土類磁石は、高い電気抵抗を有し、その上、磁石特性にも優れる。このため、本発明の希土類磁石を用いて製造されたモータを利用すれば、モータの連続出力を高めることが容易に可能であり、中から大出力のモータとして好適といえる。また、本発明の希土類磁石を用いたモータは、磁石特性が優れるため、製品の小型軽量化が図れる。例えば、自動車用部品に適用した場合には、車体の軽量化に伴う燃費の向上が可能である。さらに、特に電気自動車やハイブリッド電気自動車の駆動用モータとしても有効である。これまではスペースの確保が困難であった場所にも駆動用モータを搭載することが可能となり、電気自動車やハイブリッド自動車の汎用化に大きな役割を果たすと考えられる。

【0048】

## 【実施例】

以下実施例により本発明を説明するが、下記実施例により本発明が限定されるものではない。

【0049】

## ＜実施例1＞

希土類磁石粉末は、公知のHDDR法を用いて調製したNd-Fe-B系異方性磁石粉末を用いた。具体的な手順は以下の通りである。まず、組成Nd<sub>12.6</sub>Fe<sub>残部</sub>Co<sub>17.4</sub>B<sub>6.5</sub>Ga<sub>0.3</sub>Al<sub>0.5</sub>Zr<sub>0.1</sub>の成分組成の鋳塊を準備した。この鋳塊を1120℃で20時間保持して均質化した。均質化した鋳塊は、水素雰囲気中で室温から500℃まで昇温させて保持し、さらに、850℃まで昇温させて保持した。引き続いて、850℃の真空雰囲気中に保持した後、冷却して、微細な強磁性相の再結晶集合組織（結晶粒）を有する合金を得た。この合金をジョークラッシャーおよびブラウンミルを用いてアルゴンガス中で粉体化し、平均粒径300μm以下の希土類磁石粉末とした。

## 【0050】

希土類酸化物粉末は、 $Tb_2O_3$ 粉末を用いた。希土類酸化物粉末の平均粒径はボールミルを用いて約 $0.6\mu m$ に調整した。

## 【0051】

これらを用いて希土類磁石粉末および希土類酸化物粉末からなる混合体を調製した。なお、 $Tb_2O_3$ 粉末の添加量は混合体の全質量に対して7質量%となるようにした。

## 【0052】

この混合体を成型型に充填した。続いて、成型型中の混合体に磁場をかけることによって、希土類磁石粉末を磁場配向させながら仮成形した。配向磁場は $1.6MA/m$ 、成形圧力は $2 \times 10^2 MPa$ とした。

## 【0053】

この仮成形された混合体を、真空中での加圧焼結によって成形し、バルクの希土類磁石を得た。成形には、放電プラズマ焼結装置を用いた。焼結温度は $800^\circ C$ 、保持時間3分、成形時圧力は $2 \times 10^2 MPa$ とした。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。磁石密度は希土類磁石の寸法および質量から求めた。磁石特性（保磁力、最大エネルギー積）は、東英工業株式会社製パルス励磁型着磁器MPM-15を用い、着磁磁界 $10T$ にてあらかじめ試験片を着磁後、東英工業株式会社製磁石BH測定器TRF-5AH-25Autoを用いて測定した。また、電気抵抗率は、エヌピーエス株式会社製抵抗率プローブを使用した4探針法にて行った。プローブの針材質はタングステンカーバイト、針先端半径は $40\mu m$ 、針間隔は $1mm$ であり、4本の針の総加重は約 $400g$ とした。なお、以下の実施例、比較例においても同様の方法に従って得られた希土類磁石を評価した。得られた希土類磁石の磁石密度は $7.6 \times 10^3 kg/m^3$ 、保磁力は $0.98MA/m$ 、最大エネルギー積は $0.22MJ/m^3$ 、電気抵抗率は $35.0\mu\Omega m$ であった。結果をまとめて表1に示す。

## 【0054】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに優れる、異方性

Nd-Fe-B系希土類磁石であった。

【0055】

<実施例2>

希土類酸化物として、平均粒径約 $0.5\mu\text{m}$ の $\text{Dy}_2\text{O}_3$ 粉末を使用し、 $\text{Dy}_2\text{O}_3$ 粉末の添加量を混合体の全質量に対して5質量%とした以外は、実施例1と同様にしてバルクの希土類磁石を得た。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は $7.6 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、保磁力は $0.96 \text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は $0.23 \text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は $32.0 \mu\Omega\text{m}$ であった。結果をまとめて表1に示す。

【0056】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに優れる、異方性Nd-Fe-B系希土類磁石であった。

【0057】

<実施例3>

希土類酸化物として、平均粒径約 $0.9\mu\text{m}$ の $\text{Ho}_2\text{O}_3$ 粉末を使用し、 $\text{Ho}_2\text{O}_3$ 粉末の添加量を混合体の全質量に対して6質量%とした以外は、実施例1と同様にしてバルクの希土類磁石を得た。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は $7.6 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、保磁力は $0.92 \text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は $0.21 \text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は $31.0 \mu\Omega\text{m}$ であった。結果をまとめて表1に示す。

【0058】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに優れる、異方性Nd-Fe-B系希土類磁石であった。

【0059】

<実施例4>

希土類磁石粉末は、公知のUPSET法を用いて調製したNd-Fe-B系異方性磁石粉末を用いた。具体的な手順は以下の通りである。まず、組成Nd<sub>13.7</sub>

Fe 残部  $\text{Co}_{6.7}\text{B}_{5.5}\text{Ga}_{0.6}$  の成分組成の鋳塊を準備した。この鋳塊を高周波溶解し、溶湯を周速度  $30\text{ m/s}$  で回転する片ロールに噴射することにより、Nd-Fe-B 系超急冷粉末を得た。これを乳鉢により粉碎し、平均粒径  $350\text{ }\mu\text{m}$  以下に調整した。次に、粉碎された超急冷粉末を軟鋼製の円筒状容器に充填し、容器内を真空引きした後、円筒状容器を密閉した。この容器を  $800^\circ\text{C}$  に高周波加熱した後、プレス機を用いて一軸に圧縮した。続いて、容器から Nd-Fe-B 系磁石材料を取り出し、コーヒーマルを用いて平均粒径  $300\text{ }\mu\text{m}$  以下の希土類磁石粉末とした。

## 【0060】

希土類酸化物粉末は、 $\text{Tm}_2\text{O}_3$  粉末を用いた。希土類酸化物粉末の平均粒径はボールミルを用いて約  $0.5\text{ }\mu\text{m}$  に調整した。

## 【0061】

これらを用いて希土類磁石粉末および希土類酸化物粉末からなる混合体を調製した。なお、 $\text{Tm}_2\text{O}_3$  粉末の添加量は混合体の全質量に対して 4 質量% となるようにした。

## 【0062】

この混合体を成形型に充填した。続いて、成形型中の混合体に磁場をかけることによって、希土類磁石粉末を磁場配向させながら仮成形した。配向磁場は  $1.6\text{ MA/m}$ 、成形圧力は  $2 \times 10^2\text{ MPa}$  とした。

## 【0063】

この仮成形された混合体を、真空中での加圧焼結によって成形し、バルクの希土類磁石を得た。成形には、ホットプレス装置を用いた。焼結温度は  $800^\circ\text{C}$ 、保持時間 40 分、成形時圧力は  $2 \times 10^2\text{ MPa}$  とした。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は  $7.6 \times 10^3\text{ kg/m}^3$ 、保磁力は  $0.90\text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は  $0.22\text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は  $26.0\text{ }\mu\Omega\text{m}$  であった。結果をまとめて表 1 に示す。

## 【0064】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに優れる、異方性

Nd-Fe-B系希土類磁石であった。

【0065】

<比較例1>

希土類酸化物である $Tb_2O_3$ 粉末を添加しない以外は、実施例1と同様にしてバルクの希土類磁石を得た。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は $7.6 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、保磁力は $0.97 \text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は $0.26 \text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は $1.4 \mu\Omega\text{m}$ であった。結果をまとめて表1に示す。

【0066】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積に関しては優れていた。しかしながら、本発明で規定する所定の希土類酸化物を添加していないため、電気抵抗率に関しては非常に劣る、異方性Nd-Fe-B系希土類磁石であった。

【0067】

<比較例2>

希土類酸化物として、平均粒径約 $0.9 \mu\text{m}$ の $Tb_4O_7$ 粉末を使用し、 $Tb_4O_7$ 粉末の添加量を混合体の全質量に対して10質量%とした以外は、実施例1と同様にしてバルクの希土類磁石を得た。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は $7.6 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、保磁力は $0.36 \text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は $0.08 \text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は $5.0 \mu\Omega\text{m}$ であった。結果をまとめて表1に示す。

【0068】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに劣っていた。これは、加圧焼結によって成形する際に、希土類酸化物として添加した $Tb_4O_7$ 中の酸素が希土類磁石粉末中のNdによって奪われたことが原因であると推測される。

【0069】

<比較例3>

希土類酸化物として、平均粒径約 $2 \mu\text{m}$ の $HfO_2$ 粉末を使用し、 $HfO_2$ 粉末

の添加量を混合体の全質量に対して10質量%とした以外は、実施例1と同様にしてバルクの希土類磁石を得た。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は $7.8 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、保磁力は $0.09 \text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は $0.02 \text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は $2.4 \mu\Omega\text{m}$ であった。結果をまとめて表1に示す。

## 【0070】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに劣っていた。これは、加圧焼結によって成形する際に、希土類酸化物として添加した $\text{HfO}_2$ 中の酸素が希土類磁石粉末中のNdによって奪われたことが原因であると推測される。

## 【0071】

## ＜比較例4＞

希土類磁石粉末として、実施例1と同様の方法で調製されたNd-Fe-B系異方性磁石粉末（HDDR磁石粉末；平均粒径 $300 \mu\text{m}$ 以下）を用いた。これに、エポキシ樹脂を添加し混合した。なお、エポキシ樹脂の添加量は混合体の全質量に対して2質量%となるようにした。

## 【0072】

この混合物を成形型に充填した。続いて、成形型中の混合物に磁場をかけることによって、希土類磁石粉末を磁場配向させながら加圧成形して、希土類磁石を得た。配向磁場は $1.6 \text{ MA/m}$ 、成形圧力は $9.8 \times 10^2 \text{ MPa}$ とした。得られた希土類磁石の密度、保磁力、最大エネルギー積、および電気抵抗率を測定した。得られた希土類磁石の磁石密度は $5.9 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、保磁力は $0.91 \text{ MA/m}$ 、最大エネルギー積は $0.16 \text{ MJ/m}^3$ 、電気抵抗率は $15.2 \mu\Omega\text{m}$ であった。結果をまとめて表1に示す。

## 【0073】

得られた希土類磁石は、最大エネルギー積、電気抵抗率ともに、本発明の希土類磁石に比べて大きく劣るものであった。

## 【0074】

【表 1】

	希土類 磁石粉末 種類	希土類 酸化物	希土類酸化物 添加量 (質量%)	磁石密度 (kg/m <sup>3</sup> )	保磁力 (MA/m)	最大I <sub>初</sub> 積 (MJ/m <sup>3</sup> )	電気抵抗率 (μΩm)
実施例 1	HDDR	Tb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7	7.6×10 <sup>3</sup>	0.98	0.22	35.0
実施例 2	HDDR	Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5	7.6×10 <sup>3</sup>	0.96	0.23	32.0
実施例 3	HDDR	Ho <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6	7.6×10 <sup>3</sup>	0.92	0.21	31.0
実施例 4	UPSET	Tm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4	7.6×10 <sup>3</sup>	0.90	0.22	26.0
比較例 1	HDDR	なし	0	7.6×10 <sup>3</sup>	0.97	0.26	1.4
比較例 2	HDDR	Tb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10	7.6×10 <sup>3</sup>	0.36	0.08	5.0
比較例 3	HDDR	HfO <sub>2</sub>	10	7.8×10 <sup>3</sup>	0.09	0.02	2.4
比較例 4	HDDR	-	-	5.9×10 <sup>3</sup>	0.91	0.16	15.2

【0 0 7 5】

## ＜実施例 5＞

実施例 1 で得た希土類磁石を表面磁石型モータ（ステータ 1 2 極、ロータ 8 極）に適用した。図 3 は作製した集中巻の表面磁石モータの 1/4 断面図である。外側はアルミケース 1 7、その内側がステータ 1 8 であり、1 1 - 1 2 が u 相、1 3 - 1 4 が v 相、1 5 - 1 6 が w 相巻線である。また、ステータ 1 8 は電磁鋼板の積層体とした。ロータ鉄 2 0 上に図示するような形状の磁石 1 9 を配置した。なお、2 1 は軸である。実施例 1 の希土類磁石を用いて製造されたモータは、連続出力が 1. 8 k W であった。

【0 0 7 6】

## ＜比較例 5＞

比較例 1 で得た希土類磁石を用いた以外は、実施例 4 と同様にしてモータを製造した。製造されたモータは、連続出力が 1. 2 k W であった。

【0 0 7 7】

本発明の希土類磁石は、電気抵抗が高く渦電流損失が低いため、磁石発熱が少なく、熱設計において有利である。しかも、優れた磁石特性を有する。このため、モータの連続出力を容易に高め得ることが示された。

## 【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の希土類磁石の断面模式図である。

【図 2】 図 1 において破線で示した部分の拡大図である。

【図 3】 本発明の高電気抵抗希土類磁石が適用された集中巻の表面磁石型



モータの 1/4 断面図である。

【符号の説明】

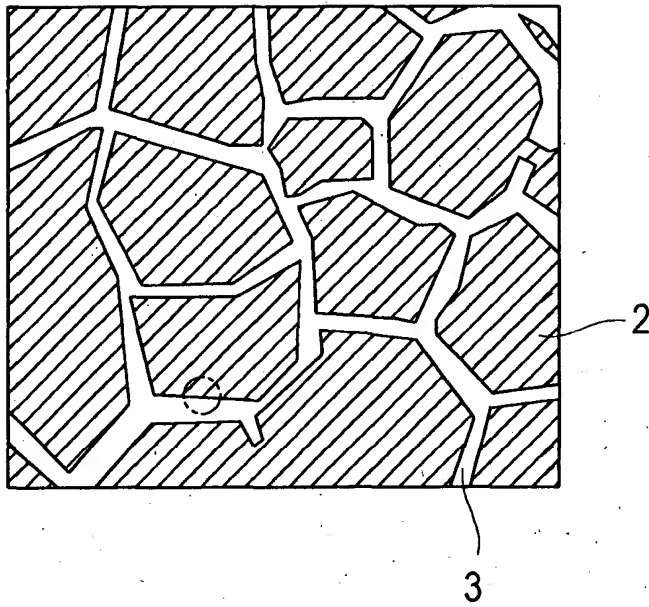
1…希土類磁石、2…希土類磁石粒子、3…希土類酸化物、4…結晶粒、11…u相巻線、12…u相巻線、13…v相巻線、14…v相巻線、15…w相巻線、16…w相巻線、17…アルミケース、18…ステータ、19…磁石、20…ロータ鉄、21…軸

【書類名】

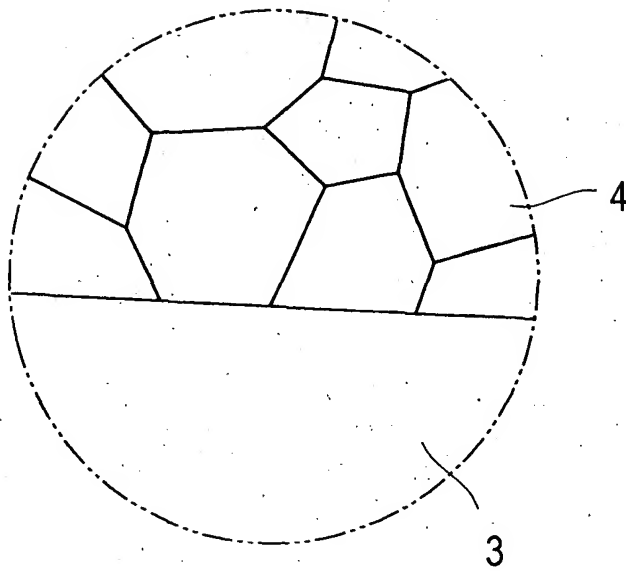
図面

【図1】

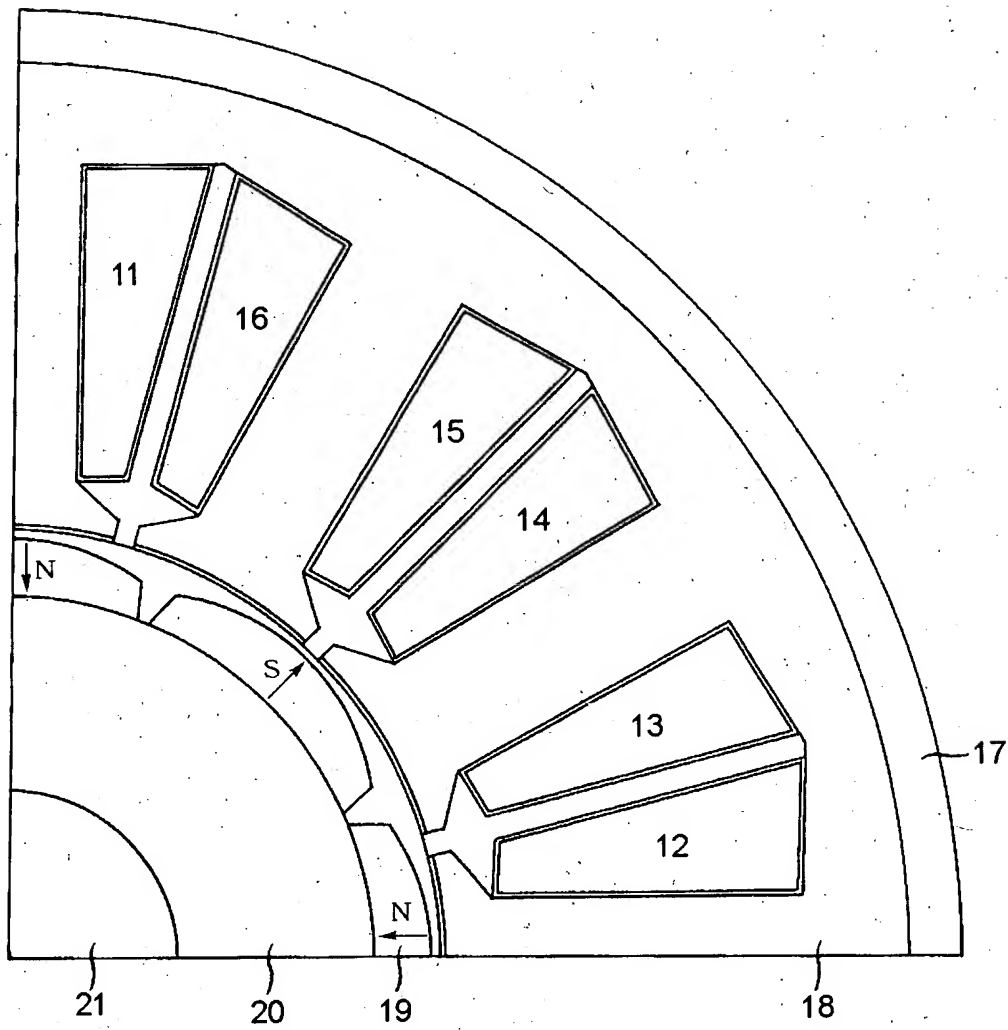
1



【図2】



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高い電気抵抗を有し、しかも磁石特性の低下が最小限に抑えられている希土類磁石を提供する。

【解決手段】 希土類磁石粒子と、前記希土類磁石粒子間に存在する下記式 (I) :

【化 1】



(式中、Rはテルビウム (Tb)、ジスプロシウム (Dy)、ホルミウム (Ho)、エルビウム (Er)、ツリウム (Tm)、イッテルビウム (Yb)、またはルテチウム (Lu) である)

で表される希土類酸化物と、を含む希土類磁石によって上記課題は解決される。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003997]

1. 変更年月日 1990年 8月31日  
[変更理由] 新規登録  
住 所 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地  
氏 名 日産自動車株式会社